

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION
EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété
Intellectuelle
Bureau international



(43) Date de la publication internationale
4 août 2005 (04.08.2005)

PCT

(10) Numéro de publication internationale
WO 2005/071403 A1

(51) Classification internationale des brevets⁷ :

G01N 33/28

F-92800 Puteaux (FR). **DELTA SERVICES INDUS-
TRIELS SPRL** [BE/BE]; 54, résidence des Mottes,
B-7503 Froyennes (BE).

(21) Numéro de la demande internationale :

PCT/FR2004/003276

(72) Inventeur; et

(75) Inventeur/Déposant (pour US seulement) : **DE-
QUENNE, Bernard** [FR/FR]; 18, Rue Soeur Bouvier,
F-69005 Lyon (FR).

(22) Date de dépôt international :

17 décembre 2004 (17.12.2004)

(74) Mandataire : **CABINET JOLLY**; 54, rue de Clichy,
F-75009 Paris (FR).

(25) Langue de dépôt :

français

(26) Langue de publication :

français

(30) Données relatives à la priorité :

0315260 23 décembre 2003 (23.12.2003) FR

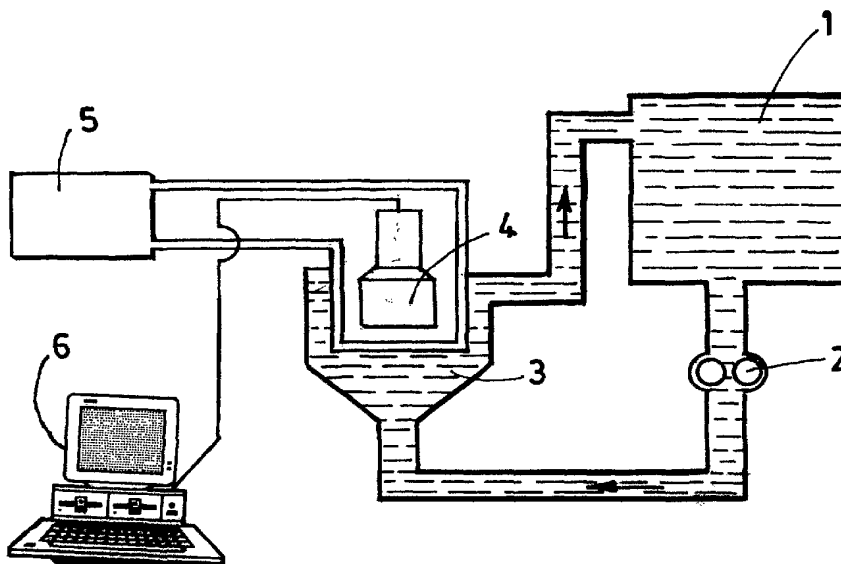
(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de
protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB,
GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG,
KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG,
MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH,

(71) Déposants (pour tous les États désignés sauf US) : **TO-
TAL FRANCE** [FR/FR]; Tour Total, 24, Cours Michelet,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR MONITORING THE DILUTION OF THE LUBRICATING OIL BY THE FUEL IN
AN INTERNAL COMBUSTION ENGINE

(54) Titre : PROCEDE ET DISPOSITIF DE SUIVI DE LA DILUTION DE L'HUILE LUBRIFIANTE PAR LE CARBURANT
DANS UN MOTEUR A COMBUSTION INTERNE



(57) Abstract: The invention relates to a method of determining the rate of dilution of the lubricating oil by the fuel in an internal combustion engine. The invention is characterised in that it comprises the following steps consisting in: marking either the lubricating oil or the fuel with a radioactive tracer, measuring the radioactivity of an oil sample using a detector that is sensitive to the radioactive radiation emitted by the radioactive tracer, and transmitting the results of the aforementioned measurements to a computer which uses said results in order to calculate the rate of dilution of the lubricating oil by the fuel. The invention also relates to a device which is used to implement said method, in particular a test bench for engines.

[Suite sur la page suivante]

WO 2005/071403 A1



PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) **États désignés** (*sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible*) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasién (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Déclaration en vertu de la règle 4.17 :

— *relative à la qualité d'inventeur (règle 4.17.iv)) pour US seulement*

Publiée :

— *avec rapport de recherche internationale*

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abréviations, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de la Gazette du PCT.

(57) **Abrégé :** L'invention concerne un procédé de détermination du taux de dilution de l'huile de lubrification d'un moteur à combustion interne par le carburant, caractérisé par le fait que l'on marque avec un traceur radioactif soit l'huile de lubrification soit le carburant, que l'on mesure, à l'aide d'un détecteur sensible au rayonnement radioactif émis par le traceur radioactif, la radioactivité d'un échantillon d'huile, et que l'on transmet les résultats de ces mesures vers un ordinateur qui calcule à partir de ces résultats le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant, ainsi qu'un dispositif permettant de mettre en oeuvre un tel procédé, en particulier un banc d'essai pour moteurs.

**PROCEDE ET DISPOSITIF DE SUIVI DE LA DILUTION DE
L'HUILE LUBRIFIANTE PAR LE CARBURANT DANS UN MOTEUR A
COMBUSTION INTERNE**

5 La présente invention concerne un procédé de détermination du
taux de dilution de l'huile de lubrification d'un moteur à combustion
interne par le carburant, par mesure de la radioactivité d'un traceur
radioactif introduit dans l'huile de lubrification ou dans le carburant,
ainsi qu'un dispositif tel qu'un banc d'essai d'un moteur à combustion
10 interne, permettant de mettre en œuvre ce procédé.

On sait l'importance que présente aussi bien pour les fabricants
d'automobiles que pour les producteurs d'huiles lubrifiantes et/ou
d'additifs fonctionnels pour huiles moteurs la connaissance précise des
phénomènes de dilution des lubrifiants par les carburants au sein des
15 nouvelles générations de moteurs à injection directe, notamment ceux à
allumage commandé ou à allumage par compression.

Ainsi, dans un moteur à allumage par compression, appelé
communément moteur diesel, le principe d'alimentation en carburant
par injection directe au sein de la chambre de combustion est à l'origine
20 d'un transfert d'une partie du carburant vers le bas moteur où il se
mélange à l'huile lubrifiante.

Ce transfert de carburant vers le système de lubrification du
moteur est encore accentué pour les moteurs équipés de systèmes de
post-traitement des gaz d'échappement, tels que des filtres à particules
25 ou des pots catalytiques. En effet, dans les moteurs équipés de tels
systèmes de post-traitement, des injections supplémentaires de
carburant peuvent être réalisées au niveau des chambres de
combustion à un moment où le carburant n'y sera pas brûlé mais
envoyé vers la ligne d'échappement où il servira pour régénérer les
30 systèmes de post-traitement des gaz d'échappement, par exemple pour
la combustion des suies accumulées dans les filtres à particules ou
pour modifier l'état d'oxydation du milieu à l'intérieur du système
catalyseur. Le taux de dilution de l'huile lubrifiante par le carburant
peut ainsi atteindre des valeurs de 10% en volume et plus.

35 L'introduction de carburant dans le circuit d'huile de lubrification
a pour conséquence, d'une part, la dégradation des caractéristiques du
lubrifiant, par exemple une réduction de sa viscosité, une dilution des

additifs, et, d'autre part, une augmentation du volume présent au sein du carter d'huile. Il en résulte une altération du fonctionnement du moteur qui se manifeste par une pression d'huile réduite et une consommation d'huile anormalement élevée et aboutit, à terme, à une usure accrue des pièces mécaniques, voire même à la casse du moteur.

Or, l'utilisation de systèmes de post-traitement des gaz d'échappement tend à se généraliser en raison des normes anti-pollution de plus en plus sévères et la résolution du problème de dilution de l'huile de lubrification évoqué ci-dessus constitue par conséquent un défi important pour l'industrie automobile.

Les constructeurs automobiles doivent et devront donc réaliser de nombreux essais pour mettre au point des moteurs présentant une dilution contrôlée et si possible minimale de l'huile de lubrification par le carburant injecté au niveau des chambres de combustion.

Il existe un certain nombre de techniques telles que la chromatographie gazeuse sur colonne remplie ou capillaire permettant de doser la quantité de carburant dans des échantillons d'huile prélevés au sein d'un moteur sur un banc d'essai. Ces techniques d'analyse sont toutefois discontinues, relativement complexes, consomment l'échantillon d'huile analysé qui ne pourra plus être réintroduit dans le circuit de lubrification et demandent un temps d'analyse relativement long.

La Demanderesse a mis au point une méthode d'évaluation de la dilution de l'huile de lubrification par le carburant qui est relativement plus simple et plus rapide que les techniques connues, ne consomme pas l'échantillon analysé et qui peut fonctionner en continu, en cours de fonctionnement du moteur, de manière à fournir quasiment en temps réel le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant.

Ce procédé d'analyse est basé sur la mesure de la radioactivité d'un échantillon d'huile, cette radioactivité étant introduite dans le système sous forme d'un traceur radioactif présent soit dans l'huile de lubrification dont il s'agit d'analyser la dilution, soit dans le diluant, à savoir le carburant alimentant le moteur. Dans certaines conditions, cette radioactivité reflète en effet parfaitement la quantité d'huile de lubrification ou la quantité de carburant dans l'échantillon d'huile

analysé et permet par conséquent, grâce à un calcul simple réalisé par ordinateur, d'obtenir directement le taux de dilution de l'huile par le carburant.

La présente invention a donc pour objet un procédé de détermination du taux de dilution de l'huile de lubrification d'un moteur à combustion interne par le carburant, caractérisé par le fait que

- l'on marque avec un traceur radioactif soit l'huile de lubrification soit le carburant,

- que l'on mesure, de préférence en continu et en cours de fonctionnement du moteur, à l'aide d'un détecteur sensible au rayonnement radioactif émis par le traceur radioactif, la radioactivité d'un échantillon d'huile, et

- que l'on transmet les résultats de ces mesures vers un ordinateur qui calcule à partir de ces résultats le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant.

L'invention a également pour objet un dispositif permettant de mettre en œuvre un tel procédé d'analyse, en particulier un banc d'essai d'un moteur à combustion interne, comprenant

- un moteur à combustion interne, lubrifié par une huile de lubrification et alimenté par un mélange air/carburant, soit l'huile de lubrification soit le carburant contenant un traceur radioactif,

- un moyen permettant le prélèvement temporaire et la réinjection, en continu ou discontinu, d'un échantillon d'huile du circuit d'huile du moteur,

- à proximité immédiate de ce moyen de prélèvement temporaire et de réinjection, un détecteur sensible au rayonnement radioactif émis par le traceur radioactif présent dans l'échantillon d'huile, et

- relié audit détecteur, un ordinateur programmé pour calculer, à partir des résultats des mesures de radioactivité de l'échantillon d'huile, fournis par ledit détecteur, le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant.

Pour décrire plus en détail le procédé et le dispositif de la présente invention, on utilisera par la suite de manière parfaitement équivalente les termes « huile lubrifiante », « huile de lubrification » ou « lubrifiant » pour désigner l'huile non diluée ou la fraction d'huile dans le mélange huile/carburant qu'il s'agit d'analyser. Par contre, le terme « échantillon

d'huile » est utilisé systématiquement pour désigner l'échantillon dérivé ou prélevé provisoirement dont on mesure la radioactivité. Au début de l'essai moteur, cet « échantillon d'huile » est bien entendu constitué exclusivement de lubrifiant et ne contient pas encore de carburant.

5 Il convient de noter en outre que le terme « huile de lubrification » ou un de ses équivalents, désigne le produit lubrifiant final, c'est-à-dire la base lubrifiante contenant l'ensemble des additifs fonctionnels éventuellement présents et éventuellement le traceur radioactif qui, comme on verra ci-après, peut être un de ces additifs fonctionnels.

10 Le procédé de détermination du taux de dilution de l'huile lubrifiante dans un moteur par le carburant ne peut pas être mis en œuvre avec n'importe quel traceur radioactif. Celui-ci doit remplir notamment les conditions énoncées dans les paragraphes ci-après.

15 Le radiotraceur ne doit pas perturber le fonctionnement du moteur ou modifier de manière gênante les propriétés physico-chimiques de l'huile de lubrification ou du carburant. Pour cela il doit notamment soit être chimiquement inerte vis-à-vis des composants de ceux-ci, soit avoir une fonction similaire à celle d'un de leurs constituants (par exemple un additif fonctionnel) et se substituer
20 partiellement ou totalement à celui-ci.

Le radiotraceur doit avoir une radioactivité suffisante pour permettre des mesures précises et reproductibles. Le choix du radiotraceur est lié notamment à la quantité d'échantillon d'huile prélevée et à la sensibilité du détecteur utilisé. En d'autres termes, si le
25 détecteur est peu sensible, la radioactivité de l'échantillon d'huile doit être élevée (radioactivité forte du radiotraceur ou concentration élevée d'un radiotraceur de radioactivité relativement faible). Par contre, si le détecteur utilisé a une sensibilité élevée, la radioactivité de l'échantillon d'huile peut être relativement plus faible.

30 Enfin, le radiotraceur doit être sélectionné de manière à ce que sa quantité en circulation dans le circuit d'huile du moteur soit, sur toute la durée du procédé, directement proportionnelle soit à la quantité d'huile de lubrification soit à la quantité de carburant en circulation dans le circuit d'huile du moteur.

35 Cette proportionnalité dépend des propriétés physico-chimiques du traceur radioactif et de celles du milieu liquide (huile lubrifiante ou carburant) dans lequel il est introduit initialement. En effet, pour

refléter à tout moment la quantité d'huile lubrifiante ou la quantité de carburant dans l'échantillon d'huile (mélange huile/carburant), le traceur radioactif ne doit ni s'accumuler dans le mélange lorsque l'huile ou le carburant sont consommés, ni se consommer plus rapidement que ceux-ci, par exemple par évaporation, combustion ou décomposition thermique, ni être piégé en un endroit quelconque du moteur, tel que le filtre à huile.

A la lumière de ce qui précède, l'homme du métier choisira le radiotraceur tel que ses propriétés physico-chimiques (volatilité, stabilité thermique, réactivité chimique) soient en adéquation avec celles du milieu liquide dans lequel il est introduit et dont il doit refléter la quantité. L'homme du métier pourra notamment trouver un traceur approprié pour un milieu donné en soumettant un mélange traceur/huile lubrifiante ou un mélange traceur/carburant aux conditions de température et de pression qui règnent dans un moteur.

Comme expliqué ci-dessus, le procédé de la présente invention peut en principe être mis en œuvre soit avec un carburant marqué par un radiotraceur, soit avec une huile de lubrification marquée.

L'utilisation d'un carburant radioactif implique le marquage d'un volume relativement important dudit carburant et la maîtrise du rejet, dans les gaz d'échappement, des produits de combustion du carburant incluant le radiotraceur.

Dans le cas de l'utilisation d'un lubrifiant radioactif, le volume est inférieur, les rejets éventuels dans les gaz d'échappement sont très limités et dépendent de la consommation d'huile.

Dans la suite de la description, le procédé de l'invention est expliqué plus en détail pour le mode de réalisation où l'huile de lubrification contient le traceur radioactif initialement introduit.

Les détecteurs utilisables sont des sondes de détection de rayonnements ionisants (rayons bêta, X ou gamma) pouvant être soit de type scintillateur liquide ou solide (cristal iodure de sodium NaI(Tl), cristal BGO), soit de type semi-conducteur (cristal germanium, cristal CZT). On notera en outre que le détecteur peut déceler simultanément la présence de divers radiotraceurs. Lorsque la radioactivité de l'échantillon d'huile est élevée (radioactivité forte du radiotraceur ou une concentration élevée d'un radiotraceur de radioactivité faible), le détecteur ne nécessitera pas une sensibilité élevée. Par contre, lorsque

la radioactivité de l'échantillon d'huile n'est pas élevée, le détecteur nécessitera une sensibilité plus élevée. Préférentiellement, et afin de limiter la quantité de radiotraceurs mis en œuvre, on utilisera de préférence une sonde de mesure dont l'efficacité de détection est élevée, par exemple un cristal de type iodure de sodium de 3 x 3 pouces.

Ce type de détecteur peut exister sous forme compacte permettant la possibilité d'un dispositif embarqué sur véhicule.

En général, il est nécessaire d'amener un échantillon d'huile du circuit d'huile du moteur à tester vers une chambre de mesure de volume fixe qui se trouve dans le détecteur ou est située à proximité de celui-ci. Ce « prélèvement temporaire » suivi de la réintroduction de cet échantillon dans le circuit d'huile se fait de préférence par une dérivation. Pour des raisons pratiques relatives à la régulation du moteur, cette dérivation est de préférence située dans une zone du circuit d'huile qui est sous une pression d'huile faible, voire nulle.

Les signaux détectés par le détecteur sont ensuite traités par une série de moyens permettant de calculer le taux de dilution de l'huile lubrifiante par le carburant. Ces moyens comprennent notamment un moyen de traitement du signal détecté (par exemple un amplificateur, un filtre et un convertisseur analogique/numérique CAD), un moyen de traitement d'impulsions (par exemple un analyseur multi-canaux) et un moyen de stockage et de traitement des données acquises, par exemple un ordinateur PC. Pour le calcul du taux de dilution, le programme d'ordinateur devra bien entendu tenir compte de la diminution naturelle de la radioactivité du radiotraceur qui est directement liée au temps de demi-vie de celui-ci.

La dérivation de l'échantillon d'huile, la mesure de la radioactivité de l'échantillon dérivé et le traitement des résultats se font de préférence en continu, sur un moteur thermique en fonctionnement.

Le traceur radioactif utilisable dans la présente invention peut être soit un composé organique ou minéral d'un élément radioactif (radionucléide) soit l'élément radioactif lui-même qui est alors sous forme élémentaire. Toutefois, compte tenu des considérations ci-dessus concernant les propriétés physico-chimiques du traceur radioactif par rapport à celles de l'huile de lubrification, les formes moléculaires, organiques ou minérales, en particulier organiques, de radiotraceurs sont préférées par rapport aux formes élémentaires des radionucléides.

Le radiotraceur est donc choisi parmi les composés organiques ou minéraux ou les éléments remplissant les conditions indiquées précédemment (e.g.: caractère inerte vis-à-vis du lubrifiant ou substitution à l'un des composants du lubrifiant, radioactivité suffisante et proportionnalité huile/traceur). Toutefois, pour des raisons évidentes de manipulation et de protection de l'environnement, on choisira de préférence des traceurs contenant des radionucléides ayant une courte période, ou demi-vie, de préférence une période inférieure à 3 ans, en particulier inférieure à 1 an et encore plus préférentiellement inférieure à 30 jours. De cette manière, on évitera la production de déchets radioactifs à longue demi-vie.

Il est préférable que la période du radionucléide soit égale ou supérieure à la durée prévue de l'essai. L'ordinateur, grâce à la loi de décroissance radioactive pourra corriger facilement la valeur mesurée.

On peut citer à titre d'exemples de radionucléides ayant une période (indiquée entre parenthèses) appropriée : le ^{22}Na (2,61 ans), le ^{65}Zn (243,8 jours), le ^{45}Ca (165 jours), le ^{35}S (87,2 jours), le ^{32}P (14,3 jours), le ^{47}Ca (4,54 jours), le ^{99}Mo (65,9 heures), le ^{82}Br (35,3 heures), le ^{64}Cu (12,7 heures), le $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6,01 heures), le ^{28}Mg (20,91), le ^{68}Ge (270,95 jours), le ^{69}Ge (39h), le ^{77}Ge (11,30 heures), le ^{85}Sr (64,8 jours) et le ^{56}Co (77,3 jours).

Ces radiotraceurs sont en général produits artificiellement par réactions nucléaires, notamment par réaction d'activation. Cette activation se fait selon des méthodes familières à l'homme du métier, par exemple par exposition des éléments inactifs ou composés contenant lesdits éléments inactifs à une source de rayonnement neutronique, ou encore par exposition à un faisceau d'ions accélérés provenant d'un accélérateur de particules.

Selon les cas, les éléments inactifs ou composés contenant lesdits éléments inactifs sont activés soit avant leur incorporation dans l'huile de lubrification ou dans le carburant, soit au sein même de l'huile ou du carburant, c'est-à-dire en exposant l'huile ou le carburant contenant l'élément ou composé activable par exemple à un rayonnement neutronique ou à un faisceau de protons.

Une des options possibles pour obtenir des radionucléides artificiels est d'incorporer les éléments inactifs ou composés contenant lesdits éléments inactifs dans une quantité appropriée d'un vecteur (par

exemple un solvant ou diluant tel qu'une huile), puis de soumettre ce mélange à l'activation et enfin de l'ajouter à l'huile lubrifiante ou au carburant.

Les radiotraceurs peuvent être des additifs utilisés habituellement dans les huiles de lubrification ou dans les carburants, tels que des agents anti-corrosion, des agents anti-oxydants, des agents modifiant la viscosité, des additifs lubrifiants, des colorants, des additifs abaissant le point d'écoulement, des additifs détergents ou dispersants. On peut citer à titre d'exemples de tels radiotraceurs fonctionnant comme un additif fonctionnel, le dithiophosphate de zinc, les sulfonates de calcium ou de magnésium, tels que les alkylsulfonates, arylsulfonates ou alkylarylsulfonates de calcium ou de magnésium, les phénates de calcium, les phénates de magnésium, les salicylates de calcium, les salicylates de magnésium.

Cependant, l'utilisation de radiotraceurs qui n'ont aucune fonction physique ou chimique dans le système de lubrification du moteur est toute aussi appropriée.

La Demanderesse a constaté que les traceurs radioactifs particulièrement intéressants pour une introduction dans l'huile de lubrification sont certains composés du germanium-69. Ces composés sont choisis par exemple parmi les tétra-alkylgermanes. Le point d'ébullition de ces tétra-alkylgermanes étant proportionnel à la longueur des chaînes alkyle, on utilisera avantageusement un mélange de tétraalkylgermanes ayant des chaînes alkyle telles que le point d'ébullition du mélange est situé dans l'intervalle de distillation de l'huile utilisée. A titre d'exemples, le tétrahexylgermane, le tétraheptylgermane et le tétraoctylgermane ont chacun un point d'ébullition comparable à celui d'un lubrifiant moteur classique.

Exemple 1

Suivi en continu du taux de dilution d'une huile lubrifiante par du gazole dans un circuit d'huile fermé

La figure 1 illustre le dispositif expérimental ayant servi à réaliser cet exemple. On fait circuler en circuit fermé, à l'aide d'une pompe (2) dont le débit est de 3 litres/min, un volume de 5,5 litres d'une huile lubrifiante de type minérale 15W40 (marque TOTAL). Celle-ci contient un traceur radioactif. Le traceur utilisé dans cet exemple est du ^{99m}Tc

sous forme de pertechnétate de sodium $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ en solution aqueuse. Les caractéristiques de ce traceur radioactif sont les suivantes : émission gamma à 140 keV, intensité d'émission de 89 % et demi-vie de 6 heures. Afin de faciliter l'incorporation de la solution aqueuse dans l'huile lubrifiante, un dispersant d'eau commercialisé sous la marque « Bardahl Dispersant d'eau » est utilisé.

Le circuit fermé comprend, en série, un réservoir d'huile (1) ajustable en température simulant le carter du moteur à combustion interne et un cylindre à double paroi (3) d'une capacité de 1 litre constituant la chambre d'analyse, ce volume étant celui de l'échantillon d'huile prélevé. La température de l'huile est maintenue à 70°C. Au centre de la chambre d'analyse est placé un détecteur (4) standard à iodure de sodium NaI(Tl) de 7,62 X 7,62 cm, soit 3 X 3 pouces, avec photomultiplicateur intégré, dont la température est stabilisée à 30°C par un groupe thermostatique (5). Le détecteur, qui est sensible au rayonnement gamma de 140 keV émis par le radiotraceur, est relié à un système d'acquisition et de traitement de données (6) constitué d'un préamplificateur de charge modèle 2007P de marque Canberra, d'un amplificateur de spectroscopie 2020 de marque Canberra, d'un convertisseur ADC modèle 8087 de marque Canberra et d'une carte multicanaux modèle S100 de marque Canberra également. Le logiciel mis en œuvre dans cet exemple se nomme "IDSWear" et est commercialisé par la société Atlantic Nuclear Services (ANS) basée au Canada. Ce logiciel permet de suivre l'évolution temporelle du taux de comptage du détecteur dans une fenêtre d'énergie qui s'étend de 100 keV à 180 keV dans laquelle se situe le signal caractéristique du $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

En marquant les 5,5 litres d'huile de lubrification avec 1 MBq de $^{99\text{m}}\text{Tc}$, le taux de comptage initial enregistré pour l'huile non-diluée est de 9020 coups/s, ce qui correspond à l'activité du litre d'huile contenu dans la chambre d'analyse. Après 50 minutes, 95 minutes et 120 minutes, on ajoute respectivement 55 ml de carburant, 200 ml de carburant et de nouveau 200 ml de carburant (gazole au standard européen) au niveau du réservoir d'huile, ce qui correspond à une dilution de 0,99 % vol, 4,4 % vol et 7,6 % vol.

La figure 2 montre, à la fois, l'évolution en fonction du temps du taux de comptage au niveau de la chambre d'analyse (points gris clair) et de la dilution de l'huile lubrifiante par le gazole dans le mélange

huile/gazole (points noirs). La courbe de dilution est calculée, par le logiciel, à partir des valeurs mesurées du taux de comptage, suivant une règle de proportionnalité : le taux de comptage initial correspond à une dilution de 0 % vol tandis qu'un taux de comptage nul correspond à une dilution de 100 % vol.

Cet exemple montre que le taux de comptage mesuré par le détecteur reflète correctement le taux de dilution imposé par addition de carburant (gazole), aux incertitudes de mesures près.

Exemple 5

Suivi en continu du taux de dilution d'une huile lubrifiante par du gazole dans un moteur diesel

Dans cet exemple, un banc d'essai moteur Diesel a été équipé d'un circuit de dérivation d'huile de faible débit. Celui-ci permet de prélever en continu du lubrifiant venant du carter d'huile vers le détecteur avant de le renvoyer vers le moteur. Le dispositif expérimental est quasi-identique à celui de l'exemple 1 à ceci près que le réservoir d'huile a été remplacé par un moteur Diesel. Pour cet essai, on fait fonctionner le moteur Diesel de façon usuelle à faible charge et faible régime afin favoriser la dilution par le gazole : 1500tr/min, puissance 8,2 kW et température d'huile de 80°C.

Le traceur utilisé est cette fois du germanium 69 (Ge-69) sous la forme d'un composé organique soluble dans l'huile ayant une température d'ébullition qui se situe au milieu de l'intervalle de distillation de l'huile (à environ 450°C). Le traceur est utilisé à raison d'1 MBq dans 5 litres d'huile. Les caractéristiques de ce traceur radioactif sont les suivantes :

- émissions gamma : à 511 keV (47 %), 574 keV (13 %), 871 keV (12 %), 1106 keV (36 %) et 1336 keV (5 %)
- temps de demi-vie : 39 heures.

Le taux de comptage initial enregistré pour l'huile non-diluée est d'environ 950 coups/s. Ce taux de comptage s'accompagne d'une erreur statistique sur chaque point de mesure de l'ordre de 0,6 % .

Le moteur utilisé dans cet exemple est un moteur Diesel 4 cylindres à injection directe à rampe commune.

En parallèle à la mesure en continu, on effectue à intervalles réguliers des prélèvements d'un petit échantillon de lubrifiant et on détermine le taux de dilution de l'huile par le gazole par la méthode classique de chromatographie en phase gazeuse (type DIN 51380).

- 5 La courbe sur la figure 4 montre l'évolution du taux de dilution (exprimé en %) de l'huile par le gazole, mesuré en continu dans le carter d'huile par le système de détection par radio-traceurs (ligne continue) et mesuré à intervalles réguliers par chromatographie en phase gazeuse (carrés pleins). On peut constater que la mesure du taux de dilution en
- 10 continu selon le procédé de l'invention est en adéquation parfaite avec la méthode de détermination discontinue selon l'état de la technique.

REVENDICATIONS

1. Procédé de détermination du taux de dilution de l'huile de lubrification d'un moteur à combustion interne par le carburant, caractérisé par le fait que

- l'on marque avec un traceur radioactif soit l'huile de lubrification soit le carburant,
- que l'on mesure à l'aide d'un détecteur sensible au rayonnement radioactif émis par le traceur radioactif, la radioactivité d'un échantillon d'huile, et

- que l'on transmet les résultats de ces mesures vers un ordinateur qui calcule à partir de ces résultats le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que c'est l'huile de lubrification qui contient le traceur radioactif.

3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que c'est le carburant qui contient le traceur radioactif.

4. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé par le fait que l'échantillon d'huile dont on mesure la radioactivité est amené vers le détecteur puis réinjecté dans le circuit d'huile du moteur par une dérivation.

5. Procédé selon la revendication 4, caractérisé par le fait que la dérivation prélève l'échantillon d'huile au niveau d'une zone du circuit d'huile du moteur qui n'est pas sous pression ou sous une faible pression d'huile.

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé par le fait que le traceur radioactif est un composé organique ou minéral d'un élément radioactif, de préférence un composé organique d'un élément radioactif.

7. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé par le fait que l'élément radioactif a une période, ou demi-vie, inférieure à 3 ans, de préférence inférieure à 1 an, et en particulier inférieure à 30 jours.

8. Procédé selon la revendication 7, caractérisé par le fait que l'élément radioactif est choisi parmi le ^{22}Na , le ^{65}Zn , le ^{45}Ca , le ^{35}S , le ^{32}P , le ^{47}Ca , le ^{99}Mo , le ^{82}Br , le ^{64}Cu , le $^{99\text{m}}\text{Tc}$, le ^{28}Mg , le ^{68}Ge , le ^{69}Ge , le ^{77}Ge , le ^{85}Sr et le ^{56}Co .

9. Procédé selon la revendication 8, caractérisé par le fait que le radiotraceur est choisi parmi les tétra-alkylgermanes contenant du ^{69}Ge , de préférence parmi le tétrahexylgermane, le tétraheptylgermane et le tétraoctylgermane, ou un mélange de ceux-ci.

10. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé par le fait que le détecteur est une sonde de détection de rayonnements ionisants.

11. Dispositif de suivi du taux de dilution de l'huile de lubrification d'un moteur à combustion interne par le carburant, caractérisé par le fait qu'il comprend

- un moteur à combustion interne, lubrifié par une huile de lubrification et alimenté par un mélange air/carburant, soit l'huile de lubrification soit le carburant étant marqués par un traceur radioactif,

- un moyen permettant le prélèvement temporaire et la réinjection, en continu ou discontinu, d'un échantillon d'huile du circuit d'huile du moteur,

- à proximité immédiate de ce moyen de prélèvement temporaire et de réinjection, un détecteur sensible au rayonnement radioactif émis par le traceur radioactif présent dans l'échantillon d'huile, et

- relié audit détecteur, un ordinateur programmé pour calculer, à partir des résultats des mesures de radioactivité de l'échantillon d'huile, fournis par ledit détecteur, le taux de dilution de l'huile de lubrification par le carburant.

12. Dispositif selon la revendication 11, caractérisé par le fait que c'est l'huile de lubrification qui contient le traceur radioactif.

13. Dispositif selon la revendication 11, caractérisé par le fait que c'est le carburant qui contient le traceur radioactif.

14. Dispositif selon l'une des revendications 11 et 12, caractérisé par le fait que le moyen permettant le prélèvement temporaire et la réinjection, en continu ou discontinu, d'un échantillon d'huile est une dérivation.

15. Dispositif selon la revendication 14, caractérisé par le fait que la dérivation prélève et réinjecte l'échantillon d'huile au niveau d'une zone du circuit d'huile du moteur qui n'est pas sous pression ou sous une faible pression d'huile.

16. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 11 à 15, caractérisé par le fait que le traceur radioactif est un composé organique ou minéral d'un élément radioactif, de préférence un composé organique d'un élément radioactif.

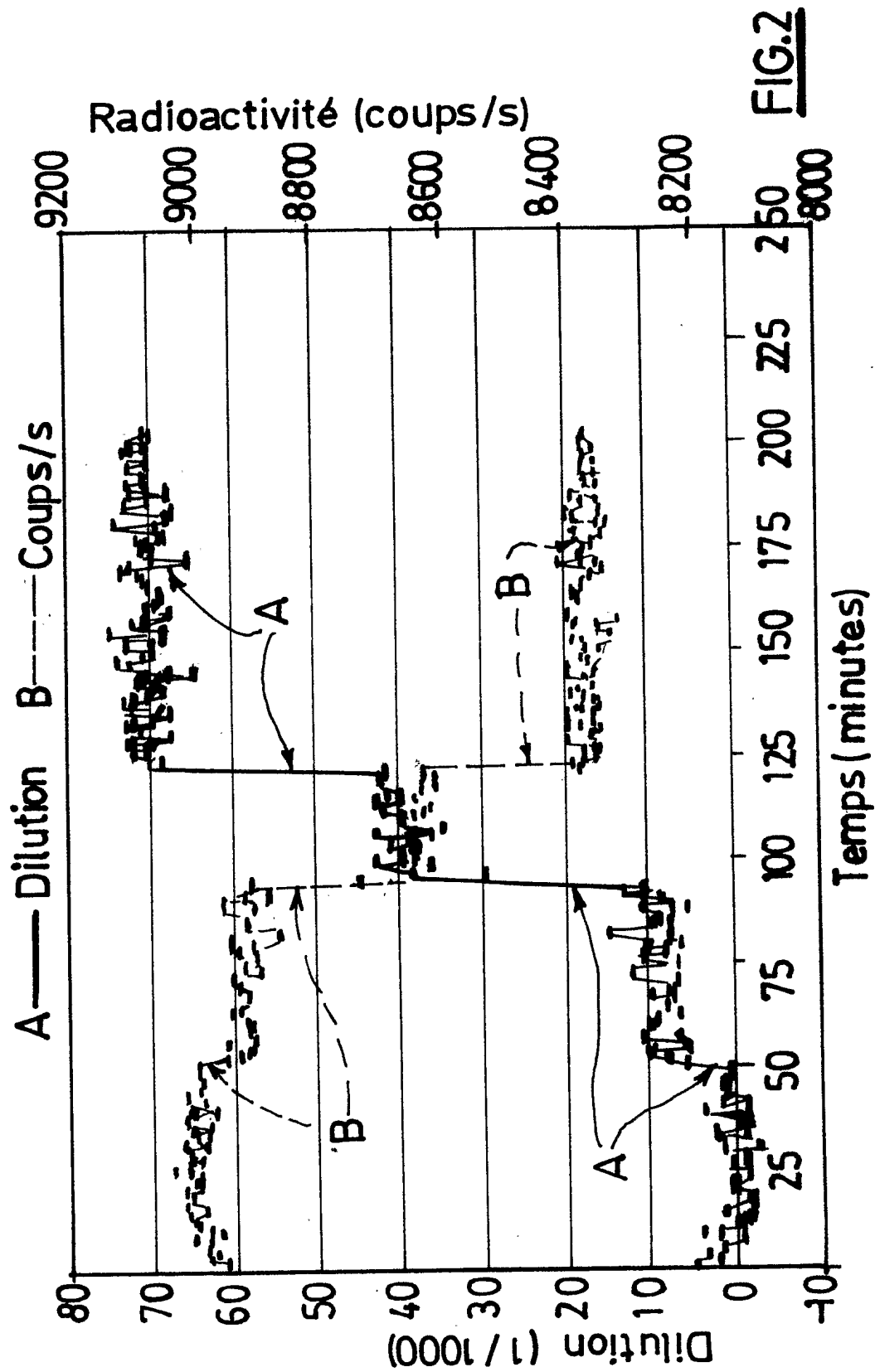
5 17. Dispositif selon l'une des revendications 11 à 16, caractérisé par le fait que l'élément radioactif a une période, ou demi-vie, inférieure à 3 ans, de préférence inférieure à 1 an, et en particulier inférieure à 30 jours.

10 18. Dispositif selon la revendication 17, caractérisé par le fait que l'élément radioactif est choisi parmi le ^{22}Na , le ^{65}Zn , le ^{45}Ca , le ^{35}S , le ^{32}P , le ^{47}Ca , le ^{99}Mo , le ^{82}Br , le ^{64}Cu , le $^{99\text{m}}\text{Tc}$, le ^{28}Mg , le ^{68}Ge , le ^{69}Ge , le ^{77}Ge , le ^{85}Sr et le ^{56}Co .

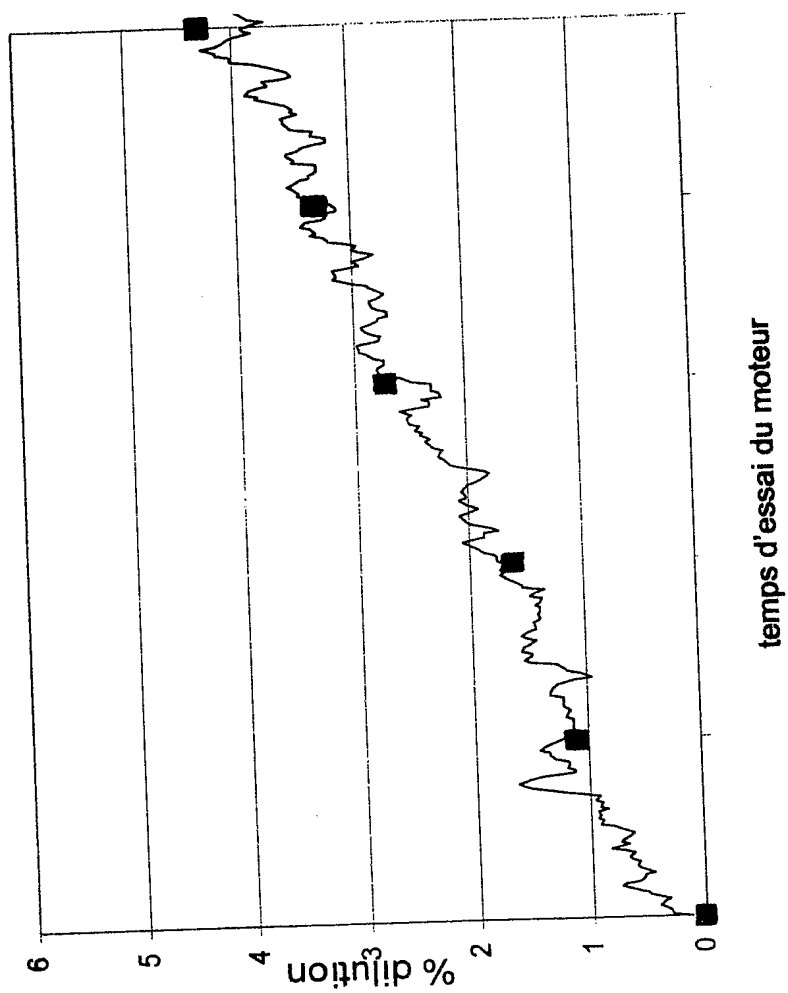
15 19. Dispositif selon la revendication 18, caractérisé par le fait que le radiotraceur est choisi parmi les tétra-alkylgermanes contenant du ^{69}Ge , de préférence parmi le tétrahexylgermane, le tétraheptylgermane et le tétraoctylgermane, ou un mélange de ceux-ci.

20. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 11 à 19, caractérisé par le fait que le détecteur est une sonde de détection de rayonnements ionisants.

2/3



3/3

**FIG. 3**

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/FR2004/003276

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 G01N33/28

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 G01N G21H G01F F16N F01M F02B G01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, INSPEC, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2 957 986 A (QUIGG HAROLD T) 25 October 1960 (1960-10-25) the whole document	1,11
A	GB 1 095 056 A (GEN MOTORS CORP) 13 December 1967 (1967-12-13) the whole document	1,11
A	US 5 445 964 A (LEE PETER S ET AL) 29 August 1995 (1995-08-29) the whole document	1,11
A	US 4 321 056 A (DIMITROFF EDWARD) 23 March 1982 (1982-03-23) the whole document	1,11
	----- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *Z* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 March 2005

Date of mailing of the international search report

30/03/2005

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Joyce, D

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/FR2004/003276

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR 1 500 048 A (COMMISSARIAT ENERGIE ATOMIQUE) 3 November 1967 (1967-11-03) the whole document -----	1,11
A	US 4 048 497 A (FRITZSCHE GERHARD) 13 September 1977 (1977-09-13) the whole document -----	1,11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR2004/003276

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2957986	A	25-10-1960	NONE	
GB 1095056	A	13-12-1967	DE 1548974 A1	29-10-1970
US 5445964	A	29-08-1995	NONE	
US 4321056	A	23-03-1982	NONE	
FR 1500048	A	03-11-1967	NONE	
US 4048497	A	13-09-1977	DE 2515960 A1	21-10-1976
			FR 2307257 A1	05-11-1976
			GB 1530512 A	01-11-1978

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande Internationale No
PCT/FR2004/003276

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
CIB 7 G01N33/28

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)
CIB 7 G01N G21H G01F F16N F01M F02B G01M

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data, INSPEC, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 2 957 986 A (QUIGG HAROLD T) 25 octobre 1960 (1960-10-25) le document en entier -----	1, 11
A	GB 1 095 056 A (GEN MOTORS CORP) 13 décembre 1967 (1967-12-13) le document en entier -----	1, 11
A	US 5 445 964 A (LEE PETER S ET AL) 29 août 1995 (1995-08-29) le document en entier -----	1, 11
A	US 4 321 056 A (DIMITROFF EDWARD) 23 mars 1982 (1982-03-23) le document en entier -----	1, 11
	-/--	

☒ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

° Catégories spéciales de documents cités:

- *A* document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- *E* document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- *L* document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- *O* document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- *P* document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

- *T* document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
- *X* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
- *Y* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
- *Z* document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

21 mars 2005

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

30/03/2005

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Joyce, D

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale No

PCT/FR2004/003276

C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	FR 1 500 048 A (COMMISSARIAT ENERGIE ATOMIQUE) 3 novembre 1967 (1967-11-03) le document en entier -----	1,11
A	US 4 048 497 A (FRITZSCHE GERHARD) 13 septembre 1977 (1977-09-13) le document en entier -----	1,11

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale No

PCT/FR2004/003276

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 2957986	A	25-10-1960	AUCUN	
GB 1095056	A	13-12-1967	DE 1548974 A1	29-10-1970
US 5445964	A	29-08-1995	AUCUN	
US 4321056	A	23-03-1982	AUCUN	
FR 1500048	A	03-11-1967	AUCUN	
US 4048497	A	13-09-1977	DE 2515960 A1	21-10-1976
			FR 2307257 A1	05-11-1976
			GB 1530512 A	01-11-1978